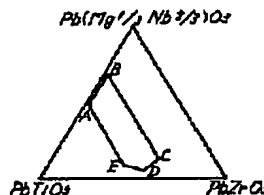


## Patent Abstracts of Japan

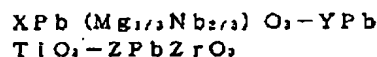
PUBLICATION NUMBER : 09157018  
PUBLICATION DATE : 17-06-97

APPLICATION DATE : 11-12-95  
APPLICATION NUMBER : 07321399



APPLICANT : MATSUSHITA ELECTRIC IND CO LTD;

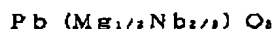
INVENTOR : NAMIUCHI RUI;



INT.CL. : C04B 35/49 H01L 41/187 H01L 41/24

TITLE : PIEZOELECTRIC CERAMIC  
COMPOSITION AND ITS PRODUCTION

I



II

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a dense piezoelectric porcelain compsn. having high density by preparing a specified compsn. containing Pb, Mg, Nb, Ti, Zr, O.

SOLUTION: This porcelain compsn. essentially consists of a compd. expressed by formula I and is prepared by adding  $Pb_3(PO_4)_2$  by 0.01-0.5wt.% to a compsn. included in the polygonal region in a triangular coordinate system having apexes representing formula II,  $PbTiO_3$  and  $PbZrO_3$  as shown in the figure. The polygonal region is defined by points A, B, C, D, E, wherein  $X+Y+Z=1$ ,  $X=0.49$ ,  $Y=0.50$ ,  $Z=0.01$  at the point (A),  $X=0.69$ ,  $Y=0.30$ ,  $Z=0.01$  at the point (B),  $X=0.08$ ,  $Y=0.30$ ,  $Z=0.51$  at the point (C),  $X=0.04$ ,  $Y=0.45$ ,  $Z=0.51$  at the point (D), and  $X=0.08$ ,  $Y=0.52$ ,  $Z=0.40$  at the point (E). The obtd. piezoelectric porcelain compsn. significantly increases the density of a sintered body and improves piezoelectricity. It is because when the piezoelectric porcelain compsn. is sintered,  $Pb_3(PO_4)_2$  reacts with the compsn. to form a liquid phase to improve the sintering property.

COPYRIGHT: (C)1997,JPO

BEST AVAILABLE COPY

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-157018

(43) 公開日 平成9年(1997)6月17日

(51) Int.Cl.<sup>6</sup>

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

C 0 4 B 35/49

C 0 4 B 35/49

R

H 0 1 L 41/187

H 0 1 L 41/18

1 0 1 F

41/24

41/22

A

審査請求 未請求 請求項の数3 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平7-321399

(22) 出願日

平成7年(1995)12月11日

(71) 出願人 000005821

松下電器産業株式会社

大阪府門真市大字門真1006番地

(72) 発明者 山口 朋一

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

(72) 発明者 浪内 類

大阪府門真市大字門真1006番地 松下電器

産業株式会社内

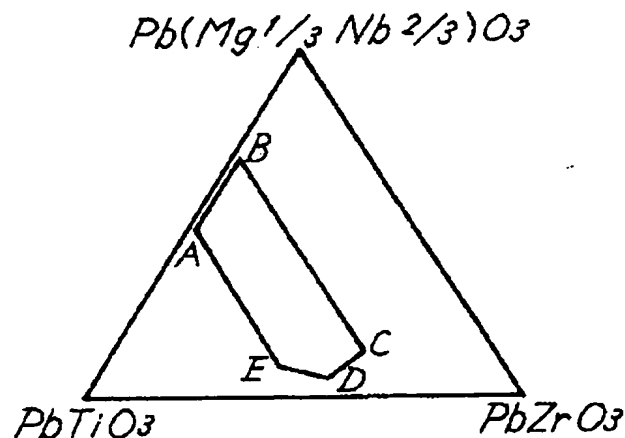
(74) 代理人 弁理士 滝本 智之 (外1名)

(54) 【発明の名称】 圧電磁器組成物およびその製造方法

(57) 【要約】

【課題】 密度が大きく緻密な圧電磁器組成物を得ることを目的とする。

【解決手段】  $X\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3 - Y\text{PbTiO}_3 - Z\text{PbZrO}_3$  を主成分とする圧電磁器組成物 (ただし、 $X+Y+Z=1$  で、Aは $X=0.49$ ,  $Y=0.50$ ,  $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ ,  $Y=0.30$ ,  $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ ,  $Y=0.30$ ,  $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ ,  $Y=0.45$ ,  $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ ,  $Y=0.52$ ,  $Z=0.40$ ) に、 $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$  を  $0.01 \sim 0.5 \text{ wt} \%$  添加することによって  $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$  が上記圧電磁器組成物の焼結時に上記圧電磁器組成物と反応して液相を形成するため上記圧電磁器組成物の焼結性が向上し密度の高い圧電性の高い圧電磁器組成物が得られる。



## 【特許請求の範囲】

【請求項1】  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、Eを頂点とする多角形内の組成に、 $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加したことを特徴とする圧電磁器組成物。(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ である。)

【請求項2】  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、Eを頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼した後、粉碎時に $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加することを特徴とする圧電磁器組成物の製造方法。(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ である。)

【請求項3】  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、Eを頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼、粉碎した後、造粒時に $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$ 0.01~0.5wt%添加することを特徴とする圧電磁器組成物の製造方法。(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ である。)

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、電気機械エネルギー変換素子として用いられる圧電磁器組成物およびその製造方法に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$ 系の圧電磁器組成物が高い圧電性をもつことは、特公昭42-9716号公報などで知られている。従来このような圧電磁器組成物は次のような方法で作られていた。す

なわち、 $\text{PbO}$ 、 $\text{ZnO}$ 、 $\text{Nb}_2\text{O}_3$ 、 $\text{TiO}_2$ 、 $\text{ZrO}_2$ を所定の組成になるように配合し、ボールミルなどで混合した後800~1000℃で仮焼して、 $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ の固溶体を得、さらにボールミルなどで粉碎し、所定の形状に成形したのち1100~1300℃で焼成するというものであった。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記の従来の組成および製造方法では、焼結体の密度が小さいので、圧電性が低く、これを利用する電気機械エネルギー変換素子の特性も低くなるという問題点を有していた。

【0004】本発明は上記従来の問題点を解決するもので、密度が大きく緻密な圧電磁器組成物を提供することを目的とする。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】この目的を達成するために本発明は、 $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成に、 $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加する圧電磁器組成物を提供するのである。さらに $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼した後、粉碎時に $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加する方法を提供するものである。またさらに、 $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3\text{--YPbTiO}_3\text{--ZPbZrO}_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ 、 $\text{PbTiO}_3$ 、 $\text{PbZrO}_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=$

0.51、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ を頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼、粉碎した後、造粒時に $Pb_3(PO_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加する方法を提供するものである。

#### 【0006】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1の圧電磁器組成物の組成さらには請求項2、3の製造方法によって $Pb_3(PO_4)_2$ が反応して焼結時に液相を作り焼結性が向上するため密度の大きい圧電性の高い圧電磁器組成物を得ることができるものである。

#### 【0007】

##### 【実施例】

(実施例1)以下本発明の一実施例について(図2)を用いて述べる。原料として化学的に純度99%以上の $PbO$ 、 $MgO$ 、 $Nb_2O_5$ 、 $TiO_2$ 、 $ZrO_2$ を所定の組成になるように秤量し、配合(1)してボールミルで混合(2)した。混合粉末を850℃で仮焼(3)した後、ボールミルで粉碎(4)した。この粉碎時に化学的に純度99.9%の $Pb_3(PO_4)_2$ 粉を添加した。得

られた粉碎混合粉にバインダーとしてポリビニルアルコールの水溶液を加えて造粒(5)して、1000kg/cm<sup>2</sup>の圧力で成形(6)し、1100~1300℃の温度で焼成(7)した。得られた焼結体を直径15mm、厚さ0.5mmの円板に加工(8)し、円板の上下面に銀電極を焼きつけた。銀電極を焼きつけた円板を100℃のシリコンオイルに浸漬し、円板の上下電極間に1.5kVの電位差を30分間与えて分極(9)を行った。分極後24~36時間を経てから電気特性を測定した。また、焼結体の質量と大きさから密度を算出した。なお、測定方法および各電気特性の計算は日本電子材料工業会の標準規格(EMAS6001~6007)に準じた。以上の方法で得た各組成の電気特性と密度を(表1)に示す。なお、表中の $\epsilon_{33}^T/\epsilon_0$ は分極方向と同じ方向の比誘電率、 $k_p$ は径方向振動の電気機械結合係数、 $\rho$ は焼結体の密度を示し、各組成における焼成温度はそれぞれの焼結体密度が最大となる焼成温度である。

#### 【0008】

##### 【表1】

No.	組 成			Pb <sub>3</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub>	F. T.	$\epsilon^T_{33}/\epsilon_0$	kp	$\rho$
	X	Y	Z	添加量(wt%)	(℃)			(g/d)
* 1	0.375	0.370	0.255	0	1200	2090	0.73	7.75
2				0.01	1200	2103	0.74	7.77
3				0.05	1200	2116	0.75	7.80
4				0.1	1200	2130	0.75	7.85
5				0.5	1200	2108	0.74	7.81
* 6				1.0	1200	2087	0.71	7.73
* 7	0.250	0.380	0.370	0	1210	1451	0.73	7.80
8				0.01	1210	1462	0.73	7.82
9				0.05	1210	1470	0.74	7.84
10				0.1	1210	1485	0.75	7.88
11				0.5	1210	1473	0.73	7.86
*12				1.0	1210	1455	0.70	7.81
*13	0.125	0.440	0.435	0	1210	1653	0.71	7.80
14				0.01	1210	1664	0.72	7.83
15				0.05	1210	1678	0.73	7.85
16				0.1	1210	1689	0.75	7.89
17				0.5	1210	1675	0.72	7.82
*18				1.0	1210	1656	0.69	7.79
*19	0.490	0.500	0.010	0	1190	1042	0.47	7.82
20				0.1	1190	1068	0.51	7.86
*21	0.690	0.300	0.010	0	1190	2224	0.45	7.83
22				0.1	1190	2257	0.49	7.90
*23	0.040	0.450	0.510	0	1190	1303	0.58	7.78
24				0.1	1190	1339	0.63	7.87
*25	0.080	0.520	0.400	0	1190	1350	0.57	7.81
26				0.1	1190	1388	0.60	7.86
*27	0.080	0.300	0.620	0	1190	1228	0.56	7.84
28				0.1	1190	1247	0.59	7.88

\* は比較例を示すものである。

【0009】この(表1)から明らかなように、XPb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>-YPbTiO<sub>3</sub>-ZPbZrO<sub>3</sub>にPb<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>を添加することによって焼結体の密度を著しく向上させ、その圧電性を向上させることができる。これはPb<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>が上記圧電磁器組成物の焼結時に上記圧電磁器組成物と反応し液相を形成するため焼結性が向上するためである。しかし、Pb<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>の添加量が0.01wt%より少ない場合は添加の効果が認められず、0.5wt%を越えると粒成長が

進み密度が低下するため好ましくない。また、上記圧電磁器組成物の組成については圧電性の高い領域が特公昭42-9716号公報で述べられているが、(表1)から明らかなようにこの領域のすべてにおいて本発明は有効である。さらに、Pb<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>の添加を混合時にする場合と粉碎時に添加する場合で比較すると(表2)のようになる。

【0010】

【表2】

Pb <sub>3</sub> (PO <sub>4</sub> ) <sub>2</sub> 添加時期	$\epsilon^T_{33}/\epsilon_0$	kp	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )
混 合 時	1664	0.73	7.85
粉 碎 時	1689	0.75	7.89

(ただし、X=0.125、Y=0.44、Z=0.435でPb<sub>3</sub>(PO<sub>4</sub>)<sub>2</sub>添加量は0.1wt%)

【0011】(表2)のように $Pb_3(PO_4)_2$ を粉碎時に添加したほうが密度の高い、電気性能の良い焼結体が得られる。これは混合時に添加した場合には上記圧電磁器組成物の仮焼の際に $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物と反応してしまうために、上記圧電磁器組成物の焼結時に液相が結晶粒界に存在し難くなり焼結性が向上し難くなるためである。

【0012】(実施例2)以下本発明の第2の実施例について(表3)を用いて説明する。(実施例1)と同様に $XPb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-YPbTiO_3-ZPbZrO_3$ 圧電磁器組成物(ただし、 $X=0.125$ 、

$Y=0.44$ 、 $Z=0.435$ )を作成した。ただし、(実施例1)と異なる点は、 $Pb_3(PO_4)_2$ を粉碎時ではなく造粒時に10wt%酢酸溶液として加えたことである。このように $Pb_3(PO_4)_2$ の添加を造粒時にする場合と混合時に添加する場合と比較すると(表3)のようになる。なお、 $Pb_3(PO_4)_2$ を酢酸溶液で加えるのは造粒時に圧電磁器組成物の粉体と十分に混合させるためで他の溶液または粉体で加えても良い。

【0013】

【表3】

$Pb_3(PO_4)_2$ 添加時期	$\epsilon_{T33}/\epsilon_0$	kp	$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )
混合時	1664	0.73	7.85
造粒時	1690	0.76	7.90

(ただし、 $Pb_3(PO_4)_2$ 添加量は0.1wt%)

【0014】(表3)のように $Pb_3(PO_4)_2$ を造粒時に添加したほうが密度の高い、電気性能の良い焼結体が得られる。これは混合時に添加した場合には上記圧電磁器組成物の仮焼の際に $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物と反応してしまうために、上記圧電磁器組成物の焼結時に液相が結晶粒界に存在し難くなり焼結性が向上し難くなるためである。

【0015】

【発明の効果】以上のように本発明は、(図1)のごとく $XPb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-YPbTiO_3-ZPbZrO_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 、 $PbTiO_3$ 、 $PbZrO_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成に、 $Pb_3(PO_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加することによって $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物の焼結時に上記圧電磁器組成物と反応して液相を形成するため上記圧電磁器組成物の焼結性が向上し密度の高い圧電性の高い圧電磁器組成物が得られる。さらに、 $XPb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-YPbTiO_3-ZPbZrO_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 、 $PbTiO_3$ 、 $PbZrO_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼、粉碎した後、造粒時に $Pb_3(PO_4)_2$ の酢酸溶液を $Pb_3(PO_4)_2$ に換算して0.01~0.5wt%添加することによって $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物の焼成時に上記圧電磁器組成物と反応して形成される液相が効果的に粒界に存在するため上記圧電磁器組成物の焼結性が著しく向上し密度の高い圧電性の高い圧電磁器組成物が得られる。

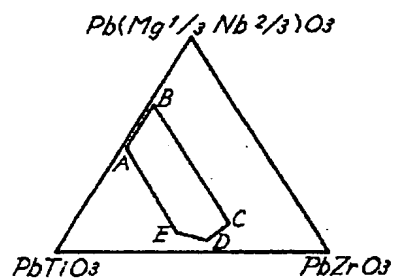
4,  $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼した後、粉碎時に $Pb_3(PO_4)_2$ を0.01~0.5wt%添加することによって $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物の焼成時に上記圧電磁器組成物と反応して形成される液相が効果的に粒界に存在するため上記圧電磁器組成物の焼結性が著しく向上し密度の高い圧電性の高い圧電磁器組成物が得られる。またさらに、 $XPb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3-YPbTiO_3-ZPbZrO_3$ を主成分とする圧電磁器組成物のうち、 $Pb(Mg_{1/3}Nb_{2/3})O_3$ 、 $PbTiO_3$ 、 $PbZrO_3$ を頂点とする三角座標で、組成A、B、C、D、E(ただし、 $X+Y+Z=1$ で、Aは $X=0.49$ 、 $Y=0.50$ 、 $Z=0.01$ 、Bは $X=0.69$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.01$ 、Cは $X=0.08$ 、 $Y=0.30$ 、 $Z=0.62$ 、Dは $X=0.04$ 、 $Y=0.45$ 、 $Z=0.51$ 、Eは $X=0.08$ 、 $Y=0.52$ 、 $Z=0.40$ )を頂点とする多角形内の組成となるように調整した原料粉を混合、仮焼、粉碎した後、造粒時に $Pb_3(PO_4)_2$ の酢酸溶液を $Pb_3(PO_4)_2$ に換算して0.01~0.5wt%添加することによって $Pb_3(PO_4)_2$ が上記圧電磁器組成物の焼成時に上記圧電磁器組成物と反応して形成される液相が効果的に粒界に存在するため上記圧電磁器組成物の焼結性が著しく向上し密度の高い圧電性の高い圧電磁器組成物が得られる。

【図面の簡単な説明】

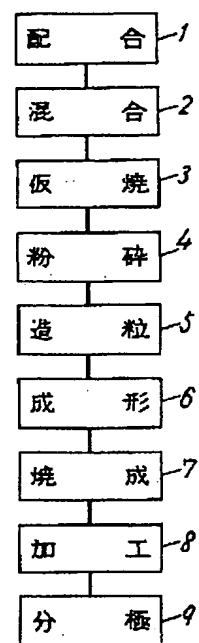
【図1】本発明の圧電磁器組成物を示す組成図

【図2】本発明の一実施例の圧電磁器組成物の製造工程を示す図

【図1】



【図2】



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 09-157018

(43)Date of publication of application : 17.06.1997

(51)Int.Cl.

C04B 35/49  
H01L 41/187  
H01L 41/24

(21)Application number : 07-321399

(71)Applicant : MATSUSHITA ELECTRIC IND  
CO LTD

(22)Date of filing : 11.12.1995

(72)Inventor : YAMAGUCHI TOMOKAZU  
NAMIUCHI RUI

## (54) PIEZOELECTRIC CERAMIC COMPOSITION AND ITS PRODUCTION

## (57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain a dense piezoelectric porcelain compsn. having high density by preparing a specified compsn. containing Pb, Mg, Nb, Ti, Zr, O.

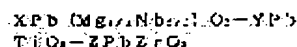
SOLUTION: This porcelain compsn. essentially consists of a compd. expressed by formula I and is prepared by adding  $Pb_3(PO_4)_2$  by 0.01-0.5wt.% to a compsn. included in the polygonal region in a

triangular coordinate system having apexes representing formula II,  $PbTiO_3$  and  $PbZrO_3$  as shown in the figure. The polygonal region is defined by points A, B, C, D, E, wherein  $X+Y+Z=1$ ,  $X=0.49$ ,

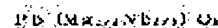
$Y=0.50$ ,  $Z=0.01$  at the point (A),  $X=0.69$ ,  $Y=0.30$ ,

$Z=0.01$  at the point (B),  $X=0.08$ ,  $Y=0.30$ ,  $Z=0.51$  at

the point (C),  $X=0.04$ ,  $Y=0.45$ ,  $Z=0.51$  at the point (D), and  $X=0.08$ ,  $Y=0.52$ ,  $Z=0.40$  at the point (E). The obtd. piezoelectric porcelain compsn. significantly increases the density of a sintered body and improves piezoelectricity. It is because when the piezoelectric porcelain compsn. is sintered,  $Pb_3(PO_4)_2$  reacts with the compsn. to form a liquid phase to improve the sintering property.



I



II

## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

BEST AVAILABLE COPY



[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

Copyright (C); 1998,2003 Japan Patent Office

JAPANESE

[JP,09-157018,A]

---

CLAIMS DETAILED DESCRIPTION TECHNICAL FIELD PRIOR ART EFFECT OF THE  
INVENTION TECHNICAL PROBLEM MEANS EXAMPLE DESCRIPTION OF DRAWINGS  
DRAWINGS

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPI are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

---

CLAIMS

---

[Claim(s)]

[Claim 1] the presentation in the polygon which makes presentations A, B, C, D, and E top-most vertices by the triangular coordinate which makes  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ , and  $\text{PbTiO}_3$  and  $\text{PbZrO}_3$  top-most vertices among the piezoelectric-ceramics constituents which use  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{YPbTiO}_3$ - $\text{ZPbZrO}_3$  as a principal component --  $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$  -- 0.01 - 0.5wt% -- the piezoelectric-ceramics constituent characterized by adding. (However, by  $X+Y+Z=1$ ) In X= 0.49, Y= 0.50, Z= 0.01, and B, X= 0.69, Y= 0.30, Z= 0.01, and C X= 0.04, Y= 0.45, Z= 0.51, and E for X= 0.08, Y= 0.30, Z= 0.62, and D X= 0.08, Y= 0.52, [ A ] it is Z= 0.40.

[Claim 2]  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ , and  $\text{PbTiO}_3$  and  $\text{PbZrO}_3$  by the triangular coordinate made into top-most vertices among the piezoelectric-ceramics constituents which use  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{YPbTiO}_3$ - $\text{ZPbZrO}_3$  as a principal component the time of grinding after mixing and carrying out temporary quenching of the raw material powder adjusted so that it might become the presentation in the polygon which makes presentations A, B, C, D, and E top-most vertices --  $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$  -- 0.01 - 0.5wt% -- the manufacture approach of the piezoelectric-ceramics constituent characterized by adding. (However, by  $X+Y+Z=1$ ) In X= 0.49, Y= 0.50, Z= 0.01, and B, X= 0.69, Y= 0.30, Z= 0.01, and C X= 0.04, Y= 0.45, Z= 0.51, and E for X= 0.08, Y= 0.30, Z= 0.62, and D X= 0.08, Y= 0.52, [ A ] it is Z= 0.40.

[Claim 3]  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ , and  $\text{PbTiO}_3$  and  $\text{PbZrO}_3$  by the triangular coordinate made into top-most vertices among the piezoelectric-ceramics constituents which use  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{YPbTiO}_3$ - $\text{ZPbZrO}_3$  as a principal component the raw material powder adjusted so that it might become the presentation in the polygon which makes presentations A, B, C, D, and E top-most vertices -- the time of the granulation mixing, temporary quenching, and after grinding --  $\text{Pb}_3(\text{PO}_4)_2$  0.01 - 0.5wt% -- the manufacture approach of the piezoelectric-ceramics constituent characterized by adding. (However, by  $X+Y+Z=1$ ) In X= 0.49, Y= 0.50, Z= 0.01, and B, X= 0.69, Y= 0.30, Z= 0.01, and C X= 0.04, Y= 0.45, Z= 0.51, and E for X= 0.08, Y= 0.30, Z= 0.62, and D X= 0.08, Y= 0.52, [ A ] it is Z= 0.40.

---

[Translation done.]

\* NOTICES \*

JPO and NCIPi are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.

2. \*\*\*\* shows the word which can not be translated.

3. In the drawings, any words are not translated.

---

DETAILED DESCRIPTION

---

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention] This invention relates to the piezoelectric-ceramics constituent used as an electric machine energy conversion component, and its manufacture approach.

[0002]

[Description of the Prior Art] It is known for JP,42-9716,B etc. that the piezoelectric-ceramics constituent of  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{TiZrO}_3$  system has piezoelectric [ high ]. Such [ conventionally ] a piezoelectric-ceramics constituent was made by the following approaches. That is, after blending  $\text{PbO}$ ,  $\text{ZnO}$ ,  $\text{Nb}_2\text{O}_3$ , and  $\text{TiO}_2$  and  $\text{ZrO}_2$  so that it may become a predetermined presentation, mixing with a ball mill etc., and carrying out temporary quenching at 800-1000 degrees C, obtaining the solid solution of  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}$ - $\text{YPbTiO}_3$ - $\text{ZPbZrO}_3$ , and a ball mill's etc. grinding further and fabricating in a predetermined configuration, it calcinated at 1100-1300 degrees C.

[0003]

[Problem(s) to be Solved by the Invention] However, by the above-mentioned conventional presentation and the manufacture approach, since the consistency of a sintered compact was small, it had the trouble that piezoelectric was low and the property of an electric machine energy conversion component of using this also became low.

[0004] This invention solves the above-mentioned conventional trouble, and a consistency aims at offering a precise large piezoelectric-ceramics constituent.

[0005]

[Means for Solving the Problem] The inside of the piezoelectric-ceramics constituent with which this invention uses  $\text{XPb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ - $\text{YPbTiO}_3$ - $\text{ZPbZrO}_3$  as a principal component in order to attain this purpose,  $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$ , and  $\text{PbTiO}_3$  and  $\text{PbZrO}_3$  by the triangular coordinate made into top-most vertices Presentations A, B, C, D, and E (however, by  $X+Y+Z=1$ )

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☐ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☐ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**